

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 07-263211

(43)Date of publication of application : 13.10.1995

(51)Int.Cl.

H01F 1/08

(21)Application number : 06-076543

(71)Applicant : SUMITOMO SPECIAL METALS CO LTD

(22)Date of filing : 22.03.1994

(72)Inventor : KANEKIYO HIROKAZU
HIROZAWA SATORU

(54) ISOTROPIC BOND MAGNET AND ITS PRODUCTION

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a powder alloy of microcrystal aggregate having constitutional phases of an Fe₃B type compound and α -iron and an Nd₂Fe₁₄B type crystal structure suitable for production of a bond magnet having a specified remanent magnetic flux density.

CONSTITUTION: The powder alloy for permanent magnet has a composition represented by a formula Fe_{100-x-y-z}B_xR_yM_z (R represents one or two kinds of Pr and Nd, M represents one or more than one kind of Al, Si, S, Ni-, Cu, Zn, Ga, Ag, Pt, Au, or Pb) where, $10 \leq x \leq 30 \text{at\%}$, $3 \leq y \leq 5 \text{at\%}$ and $0.1 \leq z \leq 3 \text{at\%}$. An Fe₃B type compound and α -iron coexist with a compound having Nd₂Fe₁₄B type crystal structure in one powder particle of a microcrystal aggregate. The average crystal particle size of each constitutional phase is in the range of 1-50nm and a powder having average particle size in the range of 3-500 μm is bonded by resin to produce an isotropic bond magnet.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-263211

(43) 公開日 平成7年(1995)10月13日

(51) Int.Cl.⁶

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

H 0 1 F 1/08

H 0 1 F 1/08

A

審査請求 未請求 請求項の数2 F D (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平6-76543

(22) 出願日 平成6年(1994)3月22日

(71) 出願人 000183417

住友特殊金属株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番19号

(72) 発明者 金清 裕和

大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住
友特殊金属株式会社山崎製作所内

(72) 発明者 広沢 哲

大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住
友特殊金属株式会社山崎製作所内

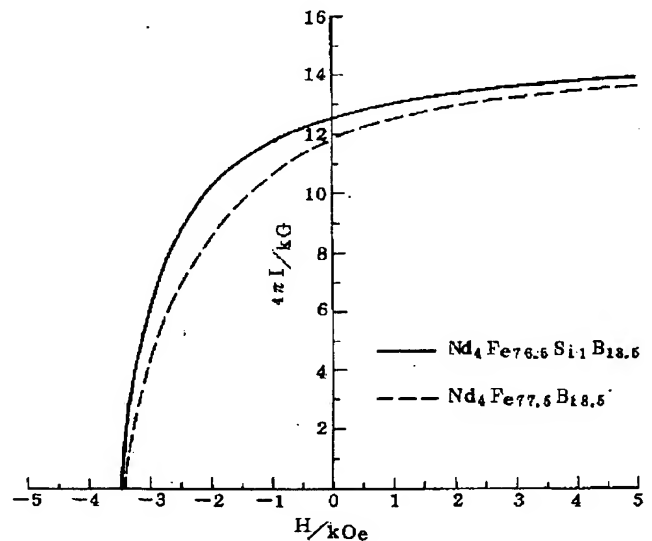
(74) 代理人 弁理士 押田 良久

(54) 【発明の名称】 等方性ボンド磁石とその製造方法

(57) 【要約】 (修正有)

【目的】 SmやCoを含まず、高残留磁束密度Brを有したFe-B-R-M系等方性磁石の製造方法と高性能ボンド磁石を安価に提供する。

【構成】 Fe-B-R-M (RはPrまたはNd、MはAl、Si、S、Ni、Cu、Zn、Ga、Ag、Pt、Au、Pbの1種もしくは2種以上) 系合金溶湯を超急冷法にてアモルファス組織あるいは微細結晶とアモルファスが混在する組織となし、得られたリボン、フレーク、球状粉末に結晶化が開始する温度付近から600～700℃の処理温度までの昇温速度がで10℃/分～50℃/秒になる結晶化熱処理を施し、Fe₃B型化合物並びにα-鉄と、Nd₂Fe₁₄B型結晶構造を有する化合物相とが同一粉末中に共存し、各構成相の平均結晶粒径が1nm～50nmの範囲にある微結晶集合体組織を有し、磁気特性と温度特性に優れた永久磁石合金粉末を得て、これを粉末粒径が3μm～500μmの粉末となして樹脂と結合することにより、等方性ボンド磁石を得る。



(2)

1

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 組成式を $\text{Fe}_{100-x-y-z} \text{B}_x \text{R}_y \text{M}_z$ (但し R は Pr または Nd の 1 種または 2 種、M は Al, Si, S, Ni, Cu, Zn, Ga, Ag, Pt, Au, Pb の 1 種または 2 種以上) と表し、組成範囲を限定する記号 x、y、z が下記値を満足し、 Fe_3B 型化合物並びに α -鉄と、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造を有する化合物相とが同一粉末粒子中に共存し、各構成相の平均結晶粒径が $1 \text{ nm} \sim 50 \text{ nm}$ の範囲にある微細結晶集合体であり、平均粒径が $3 \mu\text{m} \sim 500 \mu\text{m}$ である粉末を樹脂にて結合したことを特徴とする等方性ボンド磁石。

$$10 \leq x \leq 30 \text{ at } \%$$

$$3 \leq y \leq 5 \text{ at } \%$$

$$0.1 \leq z \leq 3 \text{ at } \%$$

【請求項 2】 組成式を $\text{Fe}_{100-x-y-z} \text{B}_x \text{R}_y \text{M}_z$ (但し R は Pr または Nd の 1 種または 2 種、M は Al, Si, S, Ni, Cu, Zn, Ga, Ag, Pt, Au, Pb の 1 種または 2 種以上) と表し、組成範囲を限定する記号 x、y、z が下記値を満足する合金溶湯を回転ロールを用いた超急冷法、スプラット急冷法、ガスアトマイズ法あるいはこれらを組み合わせて急冷し、アモルファス組織あるいは微細結晶とアモルファスが混在する組織となし、さらに結晶化が開始する温度付近から $600^\circ\text{C} \sim 700^\circ\text{C}$ の処理温度までの昇温速度が $10^\circ\text{C}/\text{分} \sim 50^\circ\text{C}/\text{秒}$ になる結晶化熱処理を施し、 Fe_3B 型化合物並びに α -鉄と、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造を有する化合物とが同一粉末粒子中に共存し、各構成相の平均結晶粒径が $1 \text{ nm} \sim 50 \text{ nm}$ の範囲にある微結晶集合体を得たのち、これを平均粒径 $3 \mu\text{m} \sim 500 \mu\text{m}$ に粉砕した磁石合金粉末を樹脂にて結合したことを特徴とする等方性ボンド磁石の製造方法。

$$10 \leq x \leq 30 \text{ at } \%$$

$$3 \leq y \leq 5 \text{ at } \%$$

$$0.1 \leq z \leq 3 \text{ at } \%$$

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 この発明は、各種モーター、スピーカー用並びにメーターおよびフォーカスコンバージェンスリングなどに最適な等方性ボンド磁石とその製造方法に係り、希土類元素を少量含有する特定組成の $\text{Fe}-\text{B}-\text{R}-\text{M}$ (M = Al, Si, S, Ni, Cu, Zn, Ga, Ag, Pt, Au, Pb) 合金溶湯を回転ロールを用いた超急冷法、スプラット急冷法、ガスアトマイズ法あるいはこれらの併用法にてアモルファス組織あるいは微細結晶とアモルファスが混在する組織とし、特定の熱処理にて Fe_3B 型化合物並びに α -鉄と $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造の構成相との微細結晶集合体からなる合金粉末を得、これを樹脂にて結合することにより、ハードフェライト磁石では得られなかった 8 kG 以上の残留磁

2

束密度 B_r を有し、温度特性にすぐれた $\text{Fe}-\text{B}-\text{R}$ 系ボンド磁石を得ることができる等方性ボンド磁石とその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 高い残留磁束密度 B_r を要求される分野や高温並びに低温下での使用を要求される永久磁石には、主に B_r が 10 kG 以上、固有保磁力 iH_c が $0.5 \text{ kOe} \sim 2 \text{ kOe}$ の磁気特性を有するアルニコ磁石、あるいは B_r が 8 kG 以上、 iH_c が 6 kOe 以上の $\text{Sm}-\text{Co}$ 磁石が使用されている。

【0003】 これらの磁石は、原産国からの供給量が不安定であり、安定的に入手し難い Co を主原料としており、アルニコ磁石の場合で $20 \sim 30 \text{ wt } \%$ 、 $\text{Sm}-\text{Co}$ 磁石で $50 \sim 65 \text{ wt } \%$ も含有している。また、 $\text{Sm}-\text{Co}$ 磁石に含有される Sm は希土類鉱物中に含まれる量が少なく極めて高価で安定的に入手し難い問題がある。しかし、自動車の電装品用のモーターやスピードメーターに用いられる磁石は、 80°C 以上の環境で使用される可能性があるため、かかる用途にはアルニコ磁石並びに $\text{Sm}-\text{Co}$ 磁石が、はるかに安価で入手できるハードフェライトをしのいで主流を占めている。

【0004】 特に、 $\text{Sm}-\text{Co}$ 磁石は今日の自動車の燃費向上の要請から高価な磁石であるにもかかわらず、その優れた磁気特性を有することから、小型高性能化が要求される磁気回路に使用されている。そこで、Co や Sm を含有せず、磁気特性と温度特性のすぐれた永久磁石材料が要求されているが、現在のところ大量生産が可能で安価に提供でき、 B_r が 8 kG 以上のボンド磁石は見出されていない。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 Co や Sm を含有しない $\text{Nd}-\text{Fe}-\text{B}$ 系磁石において、最近、 $\text{Nd}_4\text{Fe}_{77}\text{B}_{19}$ (at %) 近傍で Fe_3B 型化合物を主相とする磁石材料が提案 (R. Coehoorn 等、J. de Phys., C8, 1988, 669～670 頁) された。この磁石材料はアモルファスリボンを熱処理することにより、 Fe_3B 相と $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が混在する結晶集合組織を有する準安定構造の永久磁石材料であり、 10 kG 程度の B_r と $2 \sim 3 \text{ kOe}$ の iH_c を有するが、硬磁性材料になり得るための熱処理条件が狭く限定され、工業生産上実用的でない。

【0006】 また、この Fe_3B 型化合物を主相とする $\text{Nd}-\text{Fe}-\text{B}$ 系磁石の Nd の一部を Dy と Tb で置換して iH_c を $3 \sim 5 \text{ kOe}$ に改善する研究が発表されているが、高価な元素を添加する問題のほか、添加希土類元素はその磁気モーメントが Nd や Fe の磁気モーメントと反平行して結合するため磁化並びに減磁曲線の角形性が減少する問題がある (R. Coehoorn, J. Magn, Magn, Mat., 83 (1990) 228～230 頁)。

(3)

3

【0007】いずれにしても Fe_3B 型 $\text{Nd}-\text{Fe}-\text{B}$ 系磁石は、超急冷法によりアモルファス化した後、熱処理して硬磁性材料化できるが、 $i\text{Hc}$ が低く、かつ前記熱処理条件が狭く、安定した工業生産ができず、アルニコ磁石や $\text{Sm}-\text{Co}$ 磁石の代替えとして安価に提供することができない。

【0008】この発明は、軟磁性相と硬磁性相が同一組織内に混在し、希土類濃度が低い鉄系永久磁石材料に着目し、この磁石の $i\text{Hc}$ を向上させ、安定した工業生産が可能な製造方法の確立と、 8 kG 以上の残留磁束密度 B_r を有しハードフェライト磁石に匹敵するコストパフォーマンスを有し、安価に提供できる等方性ボンド磁石とその製造方法の提供を目的としている。

【0009】

【課題を解決するための手段】この発明は、軟磁性相と硬磁性相が同一組織内に混在し、希土類濃度が $4\text{ at}\%$ 程度と低い鉄系永久磁石の $i\text{Hc}$ を向上させ、安定した工業生産が可能な製造方法を目的に種々検討した結果、希土類元素の含有量が少なく、 Al 、 Si 、 S 、 Ni 、 Cu 、 Zn 、 Ga 、 Ag 、 Pt 、 Au 、 Pb の少なくとも1種を少量添加した鉄基の特定組成の合金溶湯を超急冷法等にてアモルファス組織あるいは微細結晶とアモルファスが混在する組織とし、特定の熱処理にて Fe_3B 型化合物並びに α -鉄と $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造の構成相との微細結晶集合体からなる合金粉末を得ることに
20 により、アルニコ磁石や $\text{Sm}-\text{Co}$ 磁石に匹敵する 10 kG 以上の残留磁束密度 B_r を有するボンド磁石に最適の永久磁石合金粉末が得られることを知見し、さらに、この合金粉末を樹脂にて結合することにより、 Co や Sm を含有せずに 8 kG 以上の残留磁束密度 B_r を有し、磁気特性と温度特性がすぐれた等方性ボンド磁石が得られることを知見し、この発明を完成した。

【0010】この発明は、組成式を $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{B}_x\text{R}_y\text{M}_z$ （但し R は Pr または Nd の1種または2種、 M は Al 、 Si 、 S 、 Ni 、 Cu 、 Zn 、 Ga 、 Ag 、 Pt 、 Au 、 Pb の1種または2種以上）と表し、組成範囲を限定する記号 x 、 y 、 z 、 w が下記値を満足し、 Fe_3B 型化合物並びに α -鉄と、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造を有する化合物とが同一粉末粒子中に共存し、各構成相の平均結晶粒径が 1 nm ～ 50 nm の範囲にある微細結晶集合体であり、平均粒径が $3\text{ }\mu\text{m}$ ～ $500\text{ }\mu\text{m}$ である粉末を樹脂にて結合したことを特徴とする等方性ボンド磁石である。

 $10 \leq x \leq 30\text{ at}\%$ $3 \leq y \leq 5\text{ at}\%$ $0.1 \leq z \leq 3\text{ at}\%$

【0011】また、この発明は、(1)組成式を $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{B}_x\text{R}_y\text{M}_z$ （但し R は Pr または Nd の1種または2種、 M は Al 、 Si 、 S 、 Ni 、 Cu 、 Zn 、 Ga 、 Ag 、 Pt 、 Au 、 Pb の1種または2種以上）
50

4

と表し、組成範囲を限定する記号 x 、 y 、 z が上述の値を満足する合金溶湯を回転ロールを用いた超急冷法、スプラット急冷法、ガスアトマイズ法あるいはこれらを組み合わせて急冷し、アモルファス組織あるいは微細結晶とアモルファスが混在する組織となし、(2)さらに結晶化が開始する温度付近から 600°C ～ 700°C の処理温度までの昇温速度が $10^\circ\text{C}/\text{分}$ ～ $50^\circ\text{C}/\text{秒}$ になる結晶化熱処理を施し、(3) Fe_3B 型化合物並びに α -鉄と、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造を有する化合物とが同一粉末粒子中に共存し、各構成相の平均結晶粒径が 1 nm ～ 50 nm の範囲にある微細結晶集合体を得たのち、

(4)これを平均粒径 $3\text{ }\mu\text{m}$ ～ $500\text{ }\mu\text{m}$ に粉碎した磁石合金粉末を樹脂にて結合ことを特徴とする等方性ボンド磁石の製造方法である。

【0012】組成の限定理由

希土類元素 R は Pr または Nd の1種また2種を特定量含有のときのみ、高い磁気特性が得られ、他の希土類、例えば Ce 、 La では $i\text{Hc}$ が 2 kOe 以上の特性が得られず、また Sm 以降の中希土類元素、重希土類元素は磁気特性の劣化を招来するとともに磁石を高価格にするため好ましくない。 R は、 $3\text{ at}\%$ 未満では 3 kOe 以上の $i\text{Hc}$ が得られず、また $5\text{ at}\%$ を越えると 8 kG 以上の B_r が得られないため、 $3\sim5\text{ at}\%$ の範囲とする。

【0013】 B は、 $10\text{ at}\%$ 未満では超急冷法を用いてもアモルファス組織が得られず、熱処理を施しても 3 kOe 未満の $i\text{Hc}$ しか得られない。また、 $30\text{ at}\%$ を越えると減磁曲線の角形性が著しく低下し、 8 kG 以上の B_r が得られないため、 $10\sim30\text{ at}\%$ の範囲とする。好ましくは、 $15\sim20\text{ at}\%$ が良い。

【0014】 Al 、 Si 、 S 、 Ni 、 Cu 、 Zn 、 Ga 、 Ag 、 Pt 、 Au 、 Pb は減磁曲線の角形性を改善し、 B_r および $(\text{BH})_{\text{max}}$ を増大させる効果を有するが、 $0.1\text{ at}\%$ 未満ではかかる効果が得られず、 $3\text{ at}\%$ を超えると 8 kG 以上の B_r が得られないため、 $0.1\sim3\text{ at}\%$ の範囲とする。好ましくは、 $0.5\sim1.5\text{ at}\%$ が良い。

【0015】 Fe は、上述の元素の含有残余を占める。

【0016】製造条件の限定理由

この発明において、上述の特定組成の合金溶湯を超急冷法にてアモルファスあるいは微細結晶とアモルファスが混在する組織となし、結晶化が開始する温度付近から 600°C ～ 700°C の処理温度までの昇温速度が $10^\circ\text{C}/\text{分}$ ～ $50^\circ\text{C}/\text{秒}$ になる結晶化熱処理を施すことにより、 Fe_3B 型化合物並びに α -鉄と、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造を有する化合物相とが同一粉末中に共存し、各構成相の平均結晶粒径が 1 nm ～ 50 nm の範囲にある微結晶集合体を得ることが最も重要であり、合金溶湯の超急冷処理には公知の回転ロールを用いた超急冷法を採用できるが、実質的にアモルファスもしくは微細結晶がアモ

5

ルファスの混在する組織が得られれば、回転ロールを用いた超急冷法の他にもスプラット急冷法、ガスアトマイズ法あるいはこれらを組み合わせた急冷方法を採用してもよい。例えば、Cu製ロールを用いる場合は、そのロール表面周速度が10～50m/秒の範囲が好適な急冷組織が得られるため好ましい。すなわちロール周速度が10m/秒未満ではアモルファス組織とならず好ましくない。また50m/秒を超えると、結晶化の際、良好な硬磁気特性の得られる微細結晶集合体とならず好ましくない。ただし、少量の α -Fe相が急冷組織中に存在していても磁気特性を著しく低下させるものでなく許容される。

【0017】この発明において、上述の特定組成の合金溶湯を超急冷法にてアモルファスあるいは微細結晶とアモルファスが混在する組織となした後、磁気特性が最高となる熱処理条件は組成に依存するが、熱処理温度が600℃未満ではNd₂Fe₁₄B相が析出しないためiHcが発現しない。また700℃を超えると粒成長が著しく、iHc、Brおよび減磁曲線の角形性が劣化し、上述の磁気特性が得られないため、熱処理温度は600～700℃に限定する。熱処理雰囲気は酸化をふせぐため、Arガス、N₂ガスなどの不活性ガス雰囲気中もしくは10⁻²Torr以上の真空中が好ましい。磁気特性は熱処理時間には依存しないが、6時間を越えるような場合、若干時間の経過とともにBrが低下する傾向があるため、好ましくは6時間未満が良い。

【0018】この発明において重要な特徴として、熱処理に際して結晶化が開始する温度付近以上からの昇温速度であり、10℃/分未満の昇温速度では、昇温中に粒成長が起こり、良好な硬磁気特性の得られる微細結晶集合体とならず、3kOe以上のiHcが得られず好ましくない。また、50℃/秒を越える昇温速度では、600℃を通過してから生成するNd₂Fe₁₄B相の析出が十分に行われず、iHcが低下するだけでなく、Br点近傍の減磁曲線の第2象限に磁化の低下のある減磁曲線となり、(BH)maxが低下するため好ましくない。結晶化が開始する温度は本磁石組成の非晶質合金中においてFe₃Bおよび α -Feが結晶化する温度であり、昇温過程における発熱反応として、DTA、DSCなどの手法を用いて明瞭に測定できる。なお、熱処理に際して結晶化開始温度までの昇温速度は任意であり、急速加熱などを適用して処理能率を高めることができる。

【0019】結晶構造

この発明による永久磁石合金粉末の結晶相は、強磁性を有するFe₃B型化合物並びに α -鉄からなる軟磁性相と、Nd₂Fe₁₄B型結晶構造を有する硬磁性相とが同一粉末中に共存し、各構成相の平均結晶粒径が1nm～50nmの範囲の微細結晶集合体からなることを特徴としている。この発明において、磁石合金の平均結晶粒径が50nmを超えると、Brおよび減磁曲線の角形性が

(4)

6

劣化し、Br \geq 8kG、(BH)max \geq 8MGoeの磁気特性を有する等方性ボンド磁石を得ることができない。また、平均結晶粒径は細かいほど好ましいが、1nm未満の平均結晶粒径を得ることは工業生産上困難であるため、下限を1nmとする。

【0020】磁石化方法

特定組成の合金溶湯を前述の超急冷法にてアモルファス組織あるいは微細結晶とアモルファスが混在する組織となし、結晶化が開始する温度付近から600℃～700℃の処理温度までの昇温速度が10℃/分～50℃/秒になる結晶化熱処理を施すことにより、平均結晶粒径が1nm～50nmの範囲にある微細結晶集合体を得た永久磁石合金粉末を用いて磁石化するには、公知のボンド磁石化方法の何れも採用することができ、必要な場合は、当該合金を平均結晶粒径が3～500 μ mに粉砕したのち、公知のバインダーと混合して所要のボンド磁石となすことにより、8kG以上の残留磁束密度Brを有する等方性ボンド磁石を得ることができる。複雑形状や薄肉形状の磁石が得られるボンド磁石としての特徴を生か

し、高精度の成型を行うには、粉末の粒径は十分小さいことが必要であるが、アトマイズで得られる粒径が100 μ mを越える合金粉末は急冷時に十分粉末内部まで冷却されず大部分が α -Fe相となるため、熱処理を施してもFe₃B並びにNd₂Fe₁₄B相が析出せずに、硬磁性材料となり得ない。また、3 μ m未満の粒径では、比表面積増大に伴い多量の樹脂を使用する必要があり、充填密度が低下して好ましくないため、粉末粒径を3 μ m～500 μ mに限定する。

【0021】この発明によるボンド磁石は等方性磁石であり、以下に示す圧縮成型、射出成型、押し出し成型、圧延成型、樹脂含浸法など公知のいずれの製造方法であってもよい。圧縮成型の場合は、磁性粉末に熱硬化性樹脂、カップリング剤、滑剤等を添加混練したのち、圧縮成型して加熱樹脂を硬化して得られる。射出成型、押し出し成型、圧延成型の場合は、磁性粉末に熱可塑性樹脂、カップリング剤、滑剤等を添加混練したのち、射出成型、押し出し成型、圧延成型のいずれかの方法にて成型して得られる。樹脂含浸法においては、磁性粉末を圧縮成型後、必要に応じて熱処理した後、熱硬化性樹脂を含浸させ、加熱して樹脂を硬化させて得る。また、磁性粉末を圧縮成型後、必要に応じて熱処理した後、熱可塑性樹脂を含浸させて得る。

【0022】この発明において、ボンド磁石中の磁性粉末の重量比は、前記製法により異なるが、70～99.5wt%であり、残部0.5～30wt%が樹脂その他である。圧縮成型の場合、磁性粉末の重量比は95～99.5wt%、射出成型の場合、磁性粉末の充填率は90～95wt%、樹脂含浸法の場合、磁性粉末の重量比は96～99.5wt%が好ましい。この発明における合成樹脂は、熱硬化性、熱可塑性のいずれの性質を有す

7

るものも利用できるが、熱的に安定な樹脂が好ましく、例えば、ポリアミド、ポリイミド、フェノール樹脂、弗素樹脂、けい素樹脂、エポキシ樹脂などを適宜選定できる。

【0023】

【作用】この発明は、希土類元素の含有量が少ない特定組成のFe-B-R-M (RはPrまたはNd、MはAl、Si、S、Ni、Cu、Zn、Ga、Ag、Pt、Au、Pbの1種もしくは2種以上)の合金溶湯を超急冷法にてアモルファス組織あるいは微細結晶とアモルファスが混在する組織となし、得られたリボン、フレーク、球状粉末を結晶化が開始する温度付近から600～700℃での温度処理までの昇温速度が10℃/分～50℃/秒になる結晶化熱処理を施すことにより、強磁性を有するFe₃B型化合物並びにα-鉄からなる軟磁性相と、Nd₂Fe₁₄B型結晶構造を有する硬磁性相とが同一粉末中に共存し、各構成相の平均結晶粒径が1nm～50nmの範囲にある微結晶集合体を得る。この際、M(=Al、Si、S、Ni、Cu、Zn、Ga、Ag、Pt、Au、Pb)を加えると、Mを含まない組成に比べ約1/2～1/3に結晶粒が微細化し、この微細結晶化によりBrおよび角形性の向上が得られ、 $iH_c \geq 3kOe$ 、 $Br \geq 10kG$ 、 $(BH)_{max} \geq 9MG Oe$ の磁気特性を有する永久磁石合金粉末を得ることができ、これを粉末粒径が3μm～500μmの粉末となして樹脂と結合することにより、 $iH_c \geq 3kOe$ 、 $Br \geq 8kG$ 、 $(BH)_{max} \geq 8MG Oe$ の磁気特性を有する等方性ボンド磁石を得ることができる。

【0024】

【実施例】

実施例1

表1のNo. 1～13の組成となるように、純度99.5%以上のFe、Al、Si、S、Ni、Cu、Zn、Ga、Ag、Pt、Au、Pb、B、Nd、Prの金属を用いて、総量が30grとなるように秤量し、底部に直径0.8mmのオリフィスを有する石英るつぼ内に投入し、圧力56cmHgのAr雰囲気中で高周波加熱により溶解し、溶解温度を1300℃にした後、湯面をArガスにより加圧してロール周速度20m/秒にて回転する室温のCu製ロールの外周面に0.7mmの高さから溶湯を噴出させて、幅2～3mm、厚み20～40μmの超急冷薄帯を作製した。得られた超急冷薄帯をCu Kαの特性X線によりアモルファスであることを確認し

(5)

8

た。

【0025】この超急冷薄帯をArガス中で、結晶化が始まる580℃～600℃以上を表1に示す昇温速度で昇温し、表1に示す熱処理温度で7分間保持し、その後室温まで冷却して薄帯を取り出し、幅2～3mm、厚み20～40μm、長さ3～5mmの試料を作製し、VSMを用いて磁気特性を測定した。測定結果としてNo. 2の試料の減磁曲線(試料形状;幅3mm、厚み30μm、長さ3mm)を図1に示す。なお、試料の構成相をCu Kαの特性X線で調査した結果、α-Fe相、Fe₃B相、Nd₂Fe₁₄B相が混在する多相組織であった。なお、Al、Si、S、Ni、Cu、Zn、Ga、Ag、Pt、Au、Pbはこれらの各相でFeの一部を置換する。平均結晶粒径はいずれも30nm以下であった。

【0026】得られた超急冷薄帯を表1の熱処理後に平均粉末粒径を150μm以下に粉砕し、エポキシ樹脂からなるバインダーを3wt%の割合で混合したのち、6ton/cm²の圧力で圧縮成型し、150℃で硬化処理して12mm×12mm×8mm寸法のボンド磁石を作成した。得られたボンド磁石の密度はいずれも6.0gr/cm³であり、磁気特性並びに25℃～140℃におけるBr及び*iH_c*の温度係数を表2に示す。

【0027】比較例

表1のNo. 14～16の組成となるように純度99.5%以上のFe、B、Rを用いて実施例1と同条件で超急冷薄帯を作製した。得られた薄帯を実施例1と同一条件の熱処理を施し、冷却後に実施例1と同条件で試料化(比較例No. 14～16)してVSMを用いて磁気特性を測定した。測定結果としてNo. 15の試料の減磁曲線(試料形状;幅3mm、厚み30μm、長さ3mm)を図1に示す。なお、試料の構成相はFe₃B相を主相とするα-Fe相とNd₂Fe₁₄B相の多相組織であり、平均結晶粒径は50nm前後とNo. 1～No. 13の試料に比べ粗大であった。得られた薄帯を実施例1と同一条件の熱処理を施し、冷却後に実施例1と同条件で粉砕して、平均粒径60μmの粉末を得たのち、実施例1と同一条件にてボンド磁石を作成した。得られたボンド磁石の磁石特性並びに25℃～140℃における永久磁石合金粉末が有するBr及び*iH_c*の温度係数を表2に示す。

【0028】

【表1】

(6)

9

10

		組成(at%)				昇温速度 (°C/分)	熱処理 温度°C
		Fe	B	R	M		
本 発 明	1	79.5	17	Nd3	Al0.5	15	640
	2	76.5	18.5	Nd4	Si1	15	660
	3	76.8	18.5	Nd4.5	S 0.2	15	650
	4	76	20	Nd5	Ni1.5	20	660
	5	75	20	Nd2.5+Pr1	Cu1.5	20	650
	6	76.5	18.5	Nd2+Pr2	Zn1	15	660
	7	75.5	18.5	Nd2+Pr3	Ga1	20	660
	8	74.5	18.5	Nd4	Ag3	20	650
	9	78	18	Nd3.5	Pt0.5	15	640
	10	76.5	18.5	Nd4.5	Au0.5	30	650
	11	75.5	18.5	Nd5	Pb1	20	670
	12	76.6	18.5	Nd4	Al0.5+Si0.5	15	650
	13	74.5	18.5	Nd5	Cu1+Ga1	20	660
比 較 例	14	80	17	Nd3	—	15	660
	15	77.5	18.5	Nd4	—	15	670
	16	76.5	18.5	Nd5	—	15	670

【0029】

* * 【表2】

		磁石特性			温度係数	
		Br (kG)	iHc (kOe)	(BH)max MGOe	Br (%/°C)	iHc (%/°C)
本 発 明	1	10.7	3.0	10.8	-0.05	-0.38
	2	10.1	3.5	9.5	-0.06	-0.41
	3	9.8	3.8	9.4	-0.05	-0.35
	4	9.2	4.4	8.6	-0.06	-0.40
	5	10.4	3.3	9.6	-0.06	-0.37
	6	9.7	3.6	9.2	-0.05	-0.39
	7	9.2	4.5	8.8	-0.07	-0.42
	8	9.6	3.7	9.3	-0.05	-0.34
	9	10.3	3.2	9.6	-0.04	-0.35
	10	9.7	4.1	9.4	-0.05	-0.36
	11	9.3	4.6	8.9	-0.07	-0.40
	12	9.9	3.5	9.4	-0.05	-0.39
	13	8.9	4.7	8.7	-0.06	-0.43
比 較 例	14	9.9	2.7	5.7	-0.05	-0.35
	15	9.6	3.4	7.0	-0.05	-0.37
	16	8.6	4.4	5.3	-0.07	-0.43

【0030】

【発明の効果】この発明は、希土類元素の含有量が少ない特定組成のFe-B-R-M (RはPr またはNd、Mは Al、Si、S、Ni、Cu、Zn、Ga、Ag、Pt、Au、Pbの1種もしくは2種以上) の合金溶湯を超急冷法にてアモルファス組織あるいは微細結晶とアモルファスが混在する組織となし、得られたリボン、フレーク、球状粉末に特定条件の熱処理を施すことにより、Fe₃B型化合物並びにα-鉄と、Nd₂Fe₁₄B型結晶構造を有する化合物相とが同一粉末中に共存し、各構成相の平均結晶粒径が1nm〜50nmの範囲にある微結晶集合体を得る。この際、M (=Al、S

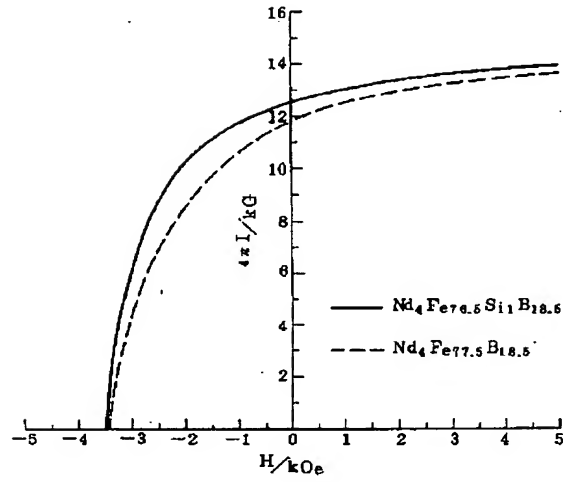
i、S、Ni、Cu、Zn、Ga、Ag、Pt、Au、Pb) を加えることで組織がMを含まない組成に比べ1/2〜1/3に微細化されることによりBrおよび減磁曲線の角形性が向上し、iHc ≥ 3kOe、Br ≥ 10kG、(BH)max ≥ 9MGOeの磁気特性を有する温度特性に優れた永久磁石合金粉末を得ることができ、これを樹脂にて結合することにより、SmやCoを含まず、製造方法が簡単で大量生産に適しているため、ハードフェライト磁石を越える磁気的性能、すなわち、iHc ≥ 3kOe、Br ≥ 8kG、(BH)max ≥ 8MGOeの磁気特性を有し、かつ温度特性に優れた安価な等方性ボンド磁石を安定して提供できる。

(7)

【図面の簡単な説明】

【図 1】 減磁曲線を示すグラフである。

【図 1】



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.